

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-008137

(43)Date of publication of application : 12.01.1996

(51)Int.Cl.

H01G 4/12  
C04B 35/48  
H01B 3/12

(21)Application number : 06-141800

(71)Applicant : MURATA MFG CO LTD

(22)Date of filing : 23.06.1994

(72)Inventor : SANO HARUNOBU  
IWAMOTO SAKIKO

## (54) LAMINAR CERAMIC CAPACITOR

### (57)Abstract:

PURPOSE: To provide a highly reliable laminar ceramic capacitor manufactured at a low cost.

CONSTITUTION: The dielectric layers of a laminar ceramic capacitor are represented by the following general formula,  $A[(Ba_{1-x-y-z}Sr_xCa_yRe_z)O_{1+z/2}.B-[(1-\alpha-\beta)-(Ti_{1-o-p}Zr_oHf_p)O_2+\alpha MaO+\beta MbO_{3/2}]$  In the general formula, Re is made of at least one kind of element selected from Dy, Ho, Er, Yb and Y, and Ma is made of at least one kind of element selected from Mn, Ni and Co, and further, Mb is made of at least one kind of element selected from Fe and Cr. The laminar ceramic capacitor is made of the nonreducing dielectric material which satisfies the following relations in the general formula,  $0 < x \leq 0.25$ ,  $0 \leq y \leq 0.15$ ,  $0 < z \leq 0.03$ ,  $0 < \alpha \leq 0.24$ ,  $0 < p \leq 0.16$ ,  $0 < \alpha \leq 0.02$ ,  $0 \leq \beta \leq 0.01$ ,  $z/3 \leq \alpha + \beta \leq 3z$  and  $0.99 \leq A/B \leq 1.03$ . Also, the internal electrodes of the laminar ceramic capacitor are made of nickel or nickel alloy.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 31.08.1999

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3316717

[Date of registration] 14.06.2002

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平 8 - 8 1 3 7

(43) 公開日 平成8年(1996)1月12日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 G 4/12	3 5 8			
C 0 4 B 35/48				
H 0 1 B 3/12	3 0 9			

C 0 4 B 35/48 D

審査請求 未請求 請求項の数 2

O L

(全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平6-141800

(22) 出願日 平成6年(1994)6月23日

(71) 出願人 000006231

株式会社村田製作所

京都府長岡京市天神二丁目26番10号

(72) 発明者 佐野 晴信

京都府長岡京市天神二丁目26番10号 株式会社村田製作所内

(72) 発明者 岩本 咲子

京都府長岡京市天神二丁目26番10号 株式会社村田製作所内

(54) 【発明の名称】 積層セラミックコンデンサ

(57) 【要約】

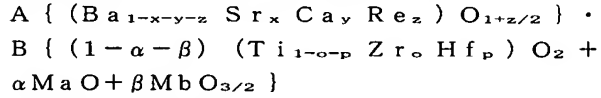
【目的】 低コストで高信頼性の積層セラミックコンデンサを提供する。

【構成】 積層セラミックコンデンサにおいて、誘電体セラミック層が、一般式  $A \{ (Ba_{1-x-y-z} Sr_x Ca_y Re_z) O_{1+z/2} \} \cdot B \{ (1-\alpha-\beta) (Ti_{1-o-p} Zr_o Hf_p) O_2 + \alpha MaO + \beta MbO_{3/2} \}$  で表され、ReはDy、Ho、Er、Yb、Yの中から選ばれる少なくとも1種類の元素からなり、MaはMn、Ni、Coから選ばれる少なくとも1種類の元素からなり、MbはFe、Crから選ばれる少なくとも1種類の元素からなり、 $0 < x \leq 0.25$ 、 $0 \leq y \leq 0.15$ 、 $0 < z \leq 0.03$ 、 $0 < o \leq 0.24$ 、 $0 < p \leq 0.16$ 、 $0 < \alpha \leq 0.02$ 、 $0 \leq \beta \leq 0.01$ 、 $z/3 \leq \alpha + \beta \leq 3z$ 、 $0.99 \leq A/B \leq 1.03$  の関係を満足する非還元性誘電体材料によって構成され、内部電極がニッケルまたはニッケル合金によって構成されている。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 複数の誘電体セラミック層と、該誘電体セラミック層を介して配置された複数の内部電極と、該内部電極に接続された外部電極とからなる積層セラミックコンデンサにおいて、

前記誘電体セラミック層が、次の一般式



で表され、ReはDy、Ho、Er、Yb、Yの中から選ばれる少なくとも1種類の元素からなり、MaはMn、Ni、Coから選ばれる少なくとも1種類の元素からなり、MbはFe、Crから選ばれる少なくとも1種類の元素からなり、x、y、z、o、p、α、β、AおよびBが、

$$0 < x \leq 0.25$$

$$0 \leq y \leq 0.15$$

$$0 < z \leq 0.03$$

$$0 < o \leq 0.24$$

$$0 < p \leq 0.16$$

$$0 < \alpha \leq 0.02$$

$$0 \leq \beta \leq 0.01$$

$$z/3 \leq \alpha + \beta \leq 3z$$

$$0.99 \leq A/B \leq 1.03$$

である非還元性誘電体材料によって構成され、

前記内部電極はニッケルまたはニッケル合金によって構成されていることを特徴とする積層セラミックコンデンサ。

【請求項 2】 前記誘電体セラミック層の結晶粒径が 3 μm 以下であることを特徴とする請求項 1 記載の積層セラミックコンデンサ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、電子機器に用いられる積層セラミックコンデンサ、特にニッケルまたはニッケル合金からなる内部電極を有する小型大容量の積層セラミックコンデンサに関する。

## 【0002】

【従来の技術】 積層セラミックコンデンサは、複数の誘電体セラミック層と各誘電体セラミック層間に配置される複数の内部電極と、誘電体セラミック層の両端面においてこれらの内部電極と接続される外部電極とからなる。

【0003】 そして、一般に、積層セラミックコンデンサは、以下のようにして製造されている。即ち、まず、その表面に内部電極となる電極材料を塗布したシート状の誘電体材料を準備する。この場合、誘電体材料としては、たとえば BaTiO<sub>3</sub> を主成分とする材料等を用いる。そして、この電極材料を塗布したシート状の誘電体材料を積層して熱圧着し、一体化したものを自然雰囲気

中において 1250～1350℃で焼成することで、内部電極を有する誘電体磁器を得る。その後、この誘電体磁器の端面に、内部電極と導通する外部電極を焼付けることにより、積層セラミックコンデンサを得る。

【0004】 したがって、内部電極の材料としては、次のような条件を満たす必要がある。

(1) 誘電体磁器と内部電極が同時に焼成されるので、誘電体磁器が焼成される温度以上の融点を有すること

(2) 酸化性の高温雰囲気中においても酸化されず、しかも誘電体と反応しないこと。

【0005】 このような条件を満足させる内部電極材料として、白金、金、パラジウムあるいはこれらの合金等の貴金属が用いられてきた。

【0006】 しかしながら、これらの電極材料は優れた特性を有する反面、高価であった。そのため、積層セラミックコンデンサに占める電極材料費の割合は 30～70%にも達し、製造コストを上昇させる最大の要因となっていた。

【0007】 貴金属以外に高融点を持つものとして、ニッケル、鉄、コバルト、タングステン、モリブデン等の卑金属があるが、これらの卑金属は高温の酸化性雰囲気中では容易に酸化されてしまい、電極としての役目を果たさなくなってしまう。そのため、これら卑金属を積層セラミックコンデンサの内部電極として使用するためには、誘電体磁器とともに中性または還元性雰囲気中で焼成する必要がある。しかしながら、従来の誘電体磁器材料は、このような還元性雰囲気中で焼成すると著しく還元されてしまい、半導体化してしまうという欠点があった。

【0008】 このような欠点を克服するために、たとえば特公昭 57-42588 号公報に示されるように、チタン酸バリウム固溶体において、バリウムサイト/チタンサイトの元素の比を化学量論比より過剰にした誘電体材料が考え出された。

【0009】 このような誘電体材料を使用することによって、還元性雰囲気中で焼成しても半導体化しない誘電体磁器を得ることができ、内部電極としてニッケル等の卑金属を使用した積層セラミックコンデンサの製造が可能になった。

## 【0010】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、内部電極としてニッケル等の卑金属を使用した積層セラミックコンデンサは、自然雰囲気中で焼成される白金、金、パラジウムあるいは銀-パラジウム合金などのような貴金属を内部電極とする積層セラミックコンデンサと比較して、高温負荷寿命が短く、高温負荷試験中における静電容量の低下が大きいという問題点を有していた。

【0011】 また、近年のエレクトロニクスの発展に伴い電子部品の小型化が急速に進行し、積層セラミックコンデンサも小型化の傾向が顕著になってきた。積層セラ

ミックコンデンサを小型化する方法としては、一般的に、大きな誘電率を有する材料を用いるか、誘電体層を薄膜化することが知られている。しかし、大きな誘電率を有する材料は、結晶粒が大きく、誘電体層が10 $\mu\text{m}$ 以下のような薄膜になると1つの層中に存在する結晶粒の数が減少し、著しく信頼性が低下してしまうという問題を有していた。

【0012】そこで、本発明の目的は、誘電体セラミック層として、還元性雰囲気中で焼成しても半導体化せず、しかも高温負荷寿命が長くて、高温での電圧印加に対する誘電率の経時変化が小さく、さらに、結晶粒径が小さいにもかかわらず大きな誘電率が得られる非還元性誘電体材料を用いることで、低コストで信頼性の高い小型大容量の積層セラミックコンデンサを提供することにある。

【0013】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、本発明の積層セラミックコンデンサは、複数の誘電体セラミック層と、該誘電体セラミック層を介して配置された複数の内部電極と、該内部電極に接続された外部電極とからなる積層セラミックコンデンサにおいて、前記誘電体セラミック層が、一般式A { (Ba<sub>1-x-y-z</sub> Sr<sub>x</sub> Ca<sub>y</sub> Re<sub>z</sub>) O<sub>1+z/2</sub> } · B { (1- $\alpha$ - $\beta$ ) (Ti<sub>1-o-p</sub> Zr<sub>o</sub> Hf<sub>p</sub>) O<sub>2</sub> +  $\alpha$ MaO +  $\beta$ MbO<sub>3/2</sub> } で表され、ReはDy、Ho、Er、Yb、Yの中から選ばれる少なくとも1種類の元素からなり、MaはMn、Ni、Coから選ばれる少なくとも1種類の元素からなり、MbはFe、Crから選ばれる少なくとも1種類の元素からなり、x、y、z、o、p、 $\alpha$ 、 $\beta$ 、AおよびBが、0 < x  $\leq$  0.25、0  $\leq$  y  $\leq$  0.15、0 < z  $\leq$  0.03、0 < o  $\leq$  0.24、0 < p  $\leq$  0.16、0 <  $\alpha$   $\leq$  0.02、0  $\leq$   $\beta$   $\leq$  0.01、z/3  $\leq$   $\alpha$  +  $\beta$   $\leq$  3z、0.99  $\leq$  A/B  $\leq$  1.03である非還元性誘電体材料によって構成され、前記内部電極はニッケルまたはニッケル合金によって構成されていることを特徴とする。

【0014】また、前記誘電体セラミック層の結晶粒径が3 $\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする。

【0015】

【実施例】以下、本発明の積層セラミックコンデンサについて、その製造方法を実施例に基づき説明する。

【0016】まず、誘電体粉末の出発原料として、純度99.8%以上のBaCO<sub>3</sub>、SrCO<sub>3</sub>、CaCO<sub>3</sub>、Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Ho<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Yb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>、HfO<sub>2</sub>、MnO、NiO、CoO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>およびCr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を準備した。

【0017】そして、これらの原料を、A { (Ba<sub>1-x-y-z</sub> Sr<sub>x</sub> Ca<sub>y</sub> Re<sub>z</sub>) O<sub>1+z/2</sub> } · B { (1- $\alpha$ - $\beta$ ) (Ti<sub>1-o-p</sub> Zr<sub>o</sub> Hf<sub>p</sub>) O<sub>2</sub> +  $\alpha$ MaO +

$\beta\text{MbO}_{3/2}$  } の組成式において、表1に示す誘電体が得られるように秤量した。その後、この配合原料をボールミルで湿式混合し粉碎した後乾燥し、空気中にて1100℃で2時間仮焼して仮焼物を得た。そして、この仮焼物を乾式粉碎機により粉碎し、粒径が1 $\mu\text{m}$ 以下の原料を得た。

【0018】次に、上記仮焼済みの原料粉末に、ポリビニルブチラール系バインダおよびエタノール等の有機溶剤を加えてボールミルにより湿式混合してスラリーを得た。そして、このスラリーをドクターブレード法によりシート状に成形して厚み14 $\mu\text{m}$ のセラミックグリーンシートを得た。

【0019】次に、上記セラミックグリーンシート上に、Niを主体とする導電ペーストを印刷し、内部電極を構成するための導電ペースト層を形成した。その後、導電ペースト層が形成されたセラミックグリーンシートを導電ペーストが引き出されている側が互い違いとなるように複数枚積層し、積層体を得た。

【0020】その後、この積層体をN<sub>2</sub>雰囲気中において350℃まで加熱して有機バインダを燃焼させた後、酸素分圧10<sup>-9</sup>~10<sup>-12</sup>MPaのH<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>Oガスからなる還元性雰囲気中において、表2に示す温度で2時間焼成し、セラミック焼結体を得た。

【0021】次に、得られたセラミック焼結体表面を走査型電子顕微鏡にて、倍率1500倍で観察し、グレインサイズを測定した。その結果を表2に示す。

【0022】その後、焼結体の両端面に銀ペーストを塗布し、N<sub>2</sub>雰囲気中にて600℃で焼付けて、内部電極と電気的に接続された外部電極を形成した。

【0023】このようにして、外形寸法が幅1.6mm×長さ3.2mm×厚み1.2mm、内部電極間の誘電体セラミック層の厚みが10 $\mu\text{m}$ 、有効誘電体セラミック層の総数が19、1層当たりの対向電極の面積が2.1mm<sup>2</sup>の積層セラミックコンデンサを得た。

【0024】次に、これら積層セラミックコンデンサの静電容量(C)および誘電損失(tan $\delta$ )を、温度25℃において周波数1kHz、1Vrmsの条件で測定し、得られた静電容量から誘電率( $\epsilon$ )を算出した。さらに、16Vの直流電圧を2分間印加して、25℃および85℃での絶縁抵抗(R)を測定し、静電容量(C)と絶縁抵抗(R)の積、即ちCR積を求めた。また、温度変化に対する静電容量の変化を測定した。なお、温度変化に対する静電容量の変化率については、20℃での静電容量を基準とした-25℃と85℃での変化率( $\Delta C/C_{20^\circ\text{C}}$ )を求めた。

【0025】また、高温負荷寿命試験として、各試料を36ケずつ、温度150℃にて直流電圧100Vを印加して、その絶縁抵抗の経時変化を測定した。このとき、各試料の絶縁抵抗値が10<sup>6</sup> $\Omega$ 以下になったときの時間を寿命とし、その平均値を平均寿命時間とした。

【0026】さらに、高温負荷試験として、各試料を36ケずつ、温度85℃にて直流電圧36Vを1000時間印加し、その前後での静電容量(C)を測定した。そして、試験前の静電容量(C<sub>0</sub>)に対する1000時間経過後の静電容量(C<sub>1000</sub>)の変化率{(C<sub>1000</sub>-C<sub>0</sub>)/C<sub>0</sub>×100}の平均値を高温負荷1000時間後の容量変化率として算出した。以上の各試験の結果を、表2に合わせて示す。

【0027】表1、表2から明らかなとおり、本発明の磁器組成物を用いた積層セラミックコンデンサは、誘電率10が8000以上と高く、誘電損失は5.0%以下で、温度に対する静電容量の変化率(ΔC/C<sub>20℃</sub>)が、-25℃~85℃の範囲でJIS規格に規定するF特性規格を満足する。しかも、25℃および85℃における絶縁抵抗は、CR積で表したときに、それぞれ5000MΩ・μF以上および500MΩ・μF以上と高い値を示す。また、平均寿命時間が100時間以上と長く、高温負荷試験1000時間前後の容量の変化率が10%以内と小さい。

【0028】さらに、焼成温度は1300℃以下と比較的低温で焼結可能であり、粒径についても3μm以下と小さい。

【0029】次に、本発明の積層セラミックコンデンサの誘電体セラミック層の組成限定理由について説明する。

【0030】A{(Ba<sub>1-x-y-z</sub>Sr<sub>x</sub>Ca<sub>y</sub>Re<sub>z</sub>)O<sub>1+z/2</sub>}・B{(1-α-β)(Ti<sub>1-o-p</sub>Zr<sub>o</sub>Hf<sub>p</sub>)O<sub>2</sub>+αMaO+βMbO<sub>3/2</sub>}において、試料番号の1に示すように、Sr量xが0の場合、誘電率が8000以下と低く、また誘電損失が5.0%を超える。また、試料番号17に示すようにSr量xが0.25を超えると、静電容量の温度変化率がJIS規格のF特性を満足しなくなる。

【0031】さらに、試料番号18に示すようにCa量yが0.15を超えると、焼結性が悪くなり、誘電率が低下する。

【0032】試料番号2に示すように、Re量zが0の場合、結晶粒径が3μmより大きくなり、平均寿命時間が短くなり、また、高温負荷1000時間後の容量変化率が10%を超える。また、試料番号19に示すように、Re量zが0.03を超えると、誘電損失が5.0%を超え、25℃および85℃での絶縁抵抗値が低下する。その上、平均寿命時間が極端に短くなり、高温負荷1000時間後の容量変化率は、高温負荷試験中に試料の絶縁抵抗が劣化して測定できなかった。

【0033】試料番号3に示すように、Zr量oが0の場合、静電容量の温度変化率が大きくなる。また、試料番号20に示すように、Zr量oが0.24を超えると、焼結性が低下し、誘電率が8000以下になる。

【0034】試料番号4に示すように、Hf量pが0の

場合、誘電率が8000以下になる。また、試料番号21に示すように、Hf量pが0.16を超えると、静電容量の温度変化率がJIS規格のF特性を満足しない。

【0035】試料番号5に示すように、MaOの添加量αが0の場合、誘電損失が5.0%を超え、25℃および85℃での絶縁抵抗が低下する。その上、平均寿命時間が極端に短くなり、高温負荷1000時間後の容量変化率は、高温負荷試験中に試料の絶縁抵抗が劣化して測定できなかった。また、試料番号22に示すように、MaOの添加量αが0.02を超えると、誘電損失が5.0%を超えて大きくなり、同時に25℃および85℃での絶縁抵抗が、それぞれ5000MΩ・μFおよび500MΩ・μFよりも小さくなり、平均寿命時間が短くなる。その上、高温負荷1000時間後の容量変化率が大きくなる。また、試料番号23に示すように、MbO<sub>3/2</sub>の添加量βが0.01を超えると、高温負荷1000時間後の容量変化率が極端に大きくなる。

【0036】さらに、試料番号6に示すように、MaOの添加量αとMbO<sub>2/3</sub>の添加量βの和α+βがRe量zの1/3より小さくなると、z、α、βそれぞれが本発明の組成範囲であっても、誘電損失が5.0%を超え、25℃および85℃での絶縁抵抗値がそれぞれ5000MΩ・μFおよび500MΩ・μFよりも小さくなり、平均寿命時間が100時間よりも短くなる。また、試料番号24に示すように、MaOの添加量αとMbO<sub>2/3</sub>の添加量βの和α+βがRe量zの3倍より大きくなると、z、α、βそれぞれが本発明の組成範囲であっても、平均寿命時間が100時間よりも短くなり、高温負荷1000時間後の容量変化率が10%よりも大きくなる。

【0037】なお、試料番号8、試料番号14~16に示すように、MaOの添加量αとMbO<sub>2/3</sub>の添加量βの和α+βがz/2≤α+β<3zの関係を満足するときには、平均寿命時間が300時間を超え、かつ、高温負荷試験1000時間後の容量の変化率が5%以内となり、より好ましい特性が得られる。

【0038】次に、試料番号7に示すように、A/B比が0.99未満の場合は、還元性雰囲気で焼成したとき磁器が還元され、半導体化して絶縁抵抗が低下してしまう。また、試料番号25に示すように、モル比A/Bが1.03を超えると焼結性が極端に悪くなる。

【0039】なお、上記実施例においては、出発原料としてBaCO<sub>3</sub>、SrCO<sub>3</sub>、CaCO<sub>3</sub>、ZrO<sub>2</sub>、HfO<sub>2</sub>等の炭酸塩または酸化物の粉末を用いたが、これらに限定されるものではない。即ち、アルコキシド法や共沈法、または水熱合成法により作製された粉末を用いてもよく、これら粉末を用いることにより、本実施例で示した特性よりも向上することもあり得る。

【0040】また、本発明の誘電体セラミック層に、微量のシリカおよび酸化ガラスのような焼結助剤を含有

させても、得られる積層セラミックコンデンサの特性を何等損なうものではない。

# 【0041】

【発明の効果】以上の説明で明かなように、本発明によれば、積層セラミックコンデンサの誘電体セラミック層に、還元性雰囲気中で焼成しても還元されず、かつ、高温での電圧印加に対する誘電率および絶縁抵抗の経時変化が小さい非還元性誘電体材料を用いるので、卑金属のニッケルまたはニッケル合金を内部電極とする低コストで、しかも高信頼性の積層セラミックコンデンサが得られる。

10 \*

\*【0042】また、この非還元性誘電体材料を用いた積層セラミックコンデンサは、誘電率が8000以上あり、しかもこのように高誘電率であるにもかかわらず結晶粒径が3 $\mu$ m以下と小さい。したがって、誘電体セラミック層を薄膜化しても、従来の積層セラミックコンデンサのように層中に存在する結晶粒の量が少なくならない。このため、信頼性が高く、しかも小型で大容量の積層セラミックコンデンサが得られる。

# 【0043】

【表1】

試料 番号	*印は、本発明の範囲外																
	A[(Ba <sub>1-x-y-z</sub> Sr <sub>x</sub> Ca <sub>y</sub> Re <sub>z</sub> )O <sub>1-3/2</sub> ]-B[(1- $\alpha$ - $\beta$ )(Ti <sub>1-<math>\alpha</math>-<math>\beta</math></sub> Zr <sub><math>\alpha</math></sub> Hf <sub><math>\beta</math></sub> )O <sub>2</sub> + $\alpha$ MnO+ $\beta$ MbO <sub>3/2</sub> ] mol%																
	A							B									
	x	y	z					o	p	$\alpha$			$\beta$		$\alpha + \beta$	A/B	
		Dy	Ho	Er	Yb	Y	Mn			Ni	Co	Fe	Cr				
* 1	0	0.05	—	—	0.005	—	—	0.08	0.01	0.003	—	—	—	0.001	0.004	1.002	
* 2	0.10	0.05	—	—	—	—	—	0.15	0.02	0.002	0.001	—	—	0.001	0.004	1.002	
* 3	0.15	0.05	—	—	0.01	—	—	0	0.10	0.004	—	—	0.0005	—	0.0045	1.000	
* 4	0.05	0.10	—	—	0.003	—	—	0.10	0	0.002	0.001	0.001	—	—	0.004	1.003	
* 5	0.08	0.02	—	—	0.008	—	—	0.15	0.005	—	—	—	0.002	—	0.002	1.002	
* 6	0.02	0.02	—	—	0.015	—	—	0.15	0.005	0.002	—	—	—	—	0.002	1.000	
* 7	0.06	0.03	—	—	0.005	—	—	0.16	0.005	0.003	—	—	—	0.001	0.004	0.980	
8	0.11	0.05	—	—	0.005	—	0.005	0.13	0.005	0.003	—	0.002	—	—	0.005	1.005	
9	0.005	0	0.02	—	0.01	—	—	0.01	0.01	0.02	—	—	—	0.01	0.03	0.895	
10	0.08	0.07	—	—	0.015	—	—	0.03	0.08	0.005	—	—	—	—	0.005	1.005	
11	0.06	0.01	—	—	0.008	—	—	0.13	0.008	0.01	—	0.01	—	—	0.004	0.996	
12	0.25	0.01	—	—	0.001	—	—	0.01	0.04	0.0005	—	—	0.0005	0.0005	0.0015	1.030	
13	0.005	0.15	—	—	—	0.003	—	0.02	0.16	0.002	0.001	—	—	—	0.003	0.997	
14	0.01	0.02	0.004	0.003	—	—	—	0.24	0.002	0.005	—	—	—	0.001	0.006	1.002	
15	0.007	0.10	—	—	0.005	—	—	0.14	0.0007	0.003	—	—	—	—	0.003	1.003	
16	0.005	0.02	—	—	0.005	—	—	0.16	0.015	0.0035	0.001	—	—	—	0.0045	1.005	
*17	0.30	0.01	—	—	0.005	—	—	0.03	0.05	0.0035	0.0015	—	—	—	0.005	1.002	
*18	0.05	0.20	0.002	—	0.005	—	—	0.13	0.001	0.005	—	—	—	0.001	0.006	1.003	
*19	0.02	0.02	—	0.03	—	—	0.015	0.02	0.005	0.01	—	—	0.01	—	0.02	1.002	
*20	0.03	0.02	—	—	0.005	—	—	0.30	0.005	0.005	—	—	—	0.001	0.006	1.002	
*21	0.08	0.02	—	—	0.005	—	—	0.05	0.20	0.005	—	—	—	0.001	0.006	1.002	
*22	0.08	0.02	—	—	0.008	—	—	0.13	0.005	0.02	0.01	—	—	0.01	0.04	1.002	
*23	0.03	0.02	0.005	—	0.005	—	—	0.12	0.01	0.012	—	—	0.01	0.01	0.032	1.002	
*24	0.03	0.02	—	—	0.008	—	—	0.14	0.005	0.01	0.01	—	—	0.01	0.03	1.002	
*25	0.03	0.02	—	—	0.005	—	—	0.14	0.005	0.005	—	0.005	—	0.002	0.012	1.040	

# 【0044】

【表2】

\*印は、本発明の範囲外

[illegible]